

N°  
707.567

Classification internationale :

C 07 c

Brevet mis en lecture le :

- 5 - 6 - 1968

MINISTÈRE DES AFFAIRES ÉCONOMIQUES

**BREVET D'INVENTION**

Le Ministre des Affaires Economiques,

*Vu la loi du 24 mai 1854 sur les brevets d'invention;**Vu la Convention d'Union pour la Protection de la Propriété Industrielle;**Vu le procès-verbal dressé le 5 décembre 1967 à 15 h. 10**au Service de la Propriété industrielle;***ARRÊTE :**

**Article 1.** — Il est délivré à la Sté dite: HALCON INTERNATIONAL, INC.,  
2 Park Avenue, New York, New York 10016 (Etats-Unis d'Amérique),  
repr. par Mr P. Hanssens à Bruxelles,

*un brevet d'invention pour : Oxydation contrôlée de l'oxyde d'éthylène,*

*qu'elle déclare avoir fait l'objet d'une demande de brevet déposée aux Etats-Unis d'Amérique le 9 décembre 1966, n° 600.407 au nom de Mm. D. Brown, J.V. Porcelli, Jr et Mile E.R. Flaster dont elle est l'ayant droit.*

**Article 2.** — Ce brevet lui est délivré sans examen préalable, à ses risques et périls, sans garantie soit de la réalité, de la nouveauté ou du mérite de l'invention, soit de l'exactitude de la description, et sans préjudice du droit des tiers.

*Au présent arrêté demeure joint un des doubles de la spécification de l'invention (mémoire descriptif et éventuellement dessins) signés par l'intéressé et déposés à l'appui de sa demande de brevet.*

Bruxelles, le 5 juin 1968

PAR DÉLÉGATION SPÉCIALE :

Le Directeur Général.

BREVET D'INVENTION.

Société dite :  
HALCON INTERNATIONAL, INC.  
-----

Oxydation contrôlée de l'oxyde d'éthylène.  
=====

Convention Internationale - Priorité d'une demande de  
brevet déposée aux Etats-Unis d'Amérique le 9 décembre  
1966 sous Serial No. 600.407 aux noms de David BROWN,  
Joseph V. PORCELLI, Jr. et Edith Reid FLASTER.  
-----

A B R E G E .

La présente invention se rapporte à un procédé  
de production d'oxyde d'éthylène par oxydation contrôlée  
de l'éthylène, catalysée par de l'argent, avec de l'oxy-  
gène moléculaire, dans lequel on utilise de l'éthane  
comme constituant substantiel de l'alimentation gazeuse  
se rendant à la zone de réaction. L'invention rend pos-  
sible l'oxydation catalytique directe de l'éthylène con-  
tenant de l'éthane comme impureté et réduit ainsi la  
charge économique de l'enlèvement de l'éthane courante  
dans les procédés de fabrication d'oxyde d'éthylène de

NO 7587

l'état de la technique. L'invention permet également l'utilisation de concentrations supérieures d'oxygène, en obtenant de meilleures sélectivité et productivité en oxyde d'éthylène comparativement à l'emploi des diluants courants tels que l'azote, l'argon et le méthane.

#### DESCRIPTION.

La présente invention se rapporte à la production d'oxyde d'éthylène. Plus particulièrement elle concerne l'oxydation contrôlée de l'éthylène, catalysée par de l'argent, en oxyde d'éthylène par l'emploi d'une alimentation gazeuse de réaction dans laquelle l'éthane est un constituant substantiel, à savoir dans laquelle l'éthane représente au moins environ 10 moles % de l'alimentation gazeuse totale allant à la zone de réaction.

Il est bien connu que l'oxydation catalysée à l'argent de l'éthylène en oxyde d'éthylène avec de l'oxygène moléculaire peut être contrôlée par l'emploi de diluants tels que de l'azote, de l'anhydride carbonique, de la vapeur d'eau et autres matières gazeuses, inertes dans les conditions de la réaction, dans la zone de réaction. Or, bien qu'un certain degré de contrôle soit ainsi maintenu sur la réaction et que l'on puisse effectuer une oxydation contrôlée de l'éthylène en oxyde d'éthylène, la conversion de l'éthylène et la sélectivité de la réaction sont telles qu'il reste encore matière à perfectionnement.

On enseigne dans l'état de la technique que la présence de méthane dans la matière diluante peut permettre l'obtention d'un contrôle additionnel, avec l'avantage concomitant d'une meilleure efficacité. Cependant, même ce procédé offre l'inconvénient d'exiger une matière

première d'éthylène pratiquement pure parce que la présence d'autres hydrocarbures saturés normalement présents, comme l'éthane, est considérée comme particulièrement nuisible à la sélectivité de la réaction, en exerçant un effet dépressif marqué sur le rendement en oxyde d'éthylène. En fait, l'état de la technique va bien au-delà de conjectures théoriques et offre des données empiriques, apparemment claires et convaincantes, pour étayer cette position intransigeante que le taux de production optimum est atteint en l'absence totale d'éthane et que, lorsque la teneur en éthane de l'alimentation totale allant au réacteur est augmentée, le taux de production diminue substantiellement. L'état de la technique enseigne aussi que l'éthane produit des moindres taux de production et qu'il doit être maintenu en-dessous de 1 mole % et de préférence en-dessous de 0,2 moles % de l'alimentation totale allant à la réaction. Par conséquent, même dans les procédés de production d'oxyde d'éthylène dans lesquels on effectue l'oxydation avec de l'oxygène très pur, à savoir au moins à environ 85 moles %, de petites quantités d'éthane dans l'alimentation d'éthylène tendant à être nuisibles en ce que le rendement global d'oxyde d'éthylène produit est ainsi réduit de façon substantielle. En général une réduction au minimum de l'éthane dans l'alimentation d'éthylène est obtenue par l'installation d'un équipement de lavage auxiliaire pour éliminer les paraffines à partir de l'éthylène alimenté. Le coût d'une telle installation et d'un tel équipement, ainsi que de leur opération, représente une charge économique importante pour le fabricant.

D'autres traitements d'élimination peuvent consister en des opérations unitaires comme la distillation,

l'absorption, l'adsorption, l'extraction, etc. Il a été également suggéré que des tamis moléculaires, tels que des adsorbants très fortement poreux composés d'alumino-silicates de sodium et de calcium cristallisés, après chauffage pour éliminer l'eau d'hydratation, soient employés pour adsorber préférentiellement l'éthylène, puis d'extraire l'éthylène adsorbé pour le recyclage au moyen d'un gaz inerte à température élevée. Quelle que soit la technique employée, il est apparent qu'il faut un équipement et des opérations de traitement qui sont préjudiciables à l'efficacité et à l'économie du procédé de fabrication d'oxyde d'éthylène dans son ensemble.

C'est pourquoi un objet majeur de la présente invention est d'apporter un procédé amélioré pour la production d'oxyde d'éthylène, qui ne comporte pas les inconvénients précités de l'état de la technique.

Un autre objet de l'invention est d'apporter un procédé de production d'oxyde d'éthylène par oxydation catalytique directe d'éthylène impur.

Un autre objet encore de l'invention est d'apporter un procédé de production d'oxyde d'éthylène qui utilise de l'éthane comme modificateur de capacité calorifique du gaz de réaction.

Un autre objet de l'invention est aussi d'apporter un procédé de production d'oxyde d'éthylène dans lequel une concentration d'oxygène élevée dans le mélange gazeux de réaction peut être employée pour améliorer la productivité.

D'autres objets de l'invention apparaîtront à la lecture de la description détaillée suivante et des revendications ci-après.

D'une manière générale, la présente invention se rapporte à un procédé de production d'oxyde d'éthylène par oxydation contrôlée, catalysée à l'argent, de l'éthylène avec de l'oxygène moléculaire, dans lequel de l'éthane est fourni en tant que constituant de l'alimentation totale allant à la réaction, en une quantité d'au moins environ 10 moles % de l'alimentation. On envisage que l'éthane employé puisse être introduit par l'alimentation d'éthylène, dans laquelle l'éthane est présent en tant qu'impureté, ou que l'éthane puisse être introduit dans le gaz de réaction à partir d'une source distincte. On envisage en outre que l'éthane puisse être introduit dans le gaz de réaction partiellement en tant qu'impureté dans l'alimentation d'éthylène et partiellement en tant que courant d'alimentation indépendant provenant d'une source distincte. Quelle que soit la manière suivant laquelle l'éthane est introduit dans le procédé, celui-ci est mis en oeuvre de manière à obtenir une concentration relativement élevée en éthane dans le gaz dans la zone de réaction. Le résultat de cette opération est l'obtention de productivités plus élevées en permettant l'emploi de concentrations d'oxygène plus élevées. Comme l'oxygène exerce une influence nominale sur la sélectivité et la vitesse de réaction, on peut obtenir une meilleure productivité sans pénalisation concomitante.

En outre, comme l'éthane sert à modérer la température de réaction de pic, la sélectivité de réaction est améliorée. L'emploi d'éthane dans le gaz de réaction conjointement avec une température optima et/ou une pression partielle d'inhibiteur de l'activité de catalyseur, se traduit par une amélioration économique substantielle

par rapport aux procédés déjà connus dans lesquels l'éthane est éliminé de l'alimentation préalablement à l'oxydation catalytique de l'éthylène.

Plus spécifiquement, l'invention envisage la production d'oxyde d'éthylène par réaction en phase vapeur de l'éthylène et de l'oxygène, où l'alimentation allant à la réaction comprend de l'éthylène, de l'oxygène et au moins 10 moles % d'éthane. Evidemment, la concentration d'oxygène dans le mélange gazeux de réaction doit être telle qu'elle n'atteint pas la limite d'inflammabilité, c'est-à-dire la concentration à laquelle une combustion ou même une explosion peut se produire. Cette limite peut être aussi considérée comme le point où une sélectivité de zéro, ou une oxydation complète, peut initialement se produire. L'éthane permet des intervalles plus étendus que l'emploi déjà connu d'azote, d'argon ou de méthane.

Dans la mise en oeuvre de l'invention, les constituants dans l'alimentation totale allant à la réaction, exprimés en mole ou volume %, sont :

	<u>en gros</u>	<u>avantageux</u>	<u>préféré</u>
éthylène	4-40	6-35	15-30
oxygène	6-15	8-14	10-13
éthane	10-20	20-70	40-60

Dans la pratique de l'invention, les meilleurs résultats sont atteints lorsqu'un inhibiteur d'activité du catalyseur, comme le dichlorure d'éthylène, est ajouté au mélange gazeux. Il est généralement avantageux d'employer un inhibiteur dans le mélange gazeux de réaction à raison de 1 à 100 ppm (parties par million) en poids, avantageusement de 5 à 70 ppm et de préférence de 10 à 20 ppm.

En plus du dichlorure d'éthylène, qui est l'inhibiteur préféré, on peut utiliser d'autres agents capables d'exercer un effet inhibiteur sur la réaction d'oxydation catalytique. Ces derniers sont d'autres composés contenant de l'halogène, dont des hydrocarbures chlorés, ainsi que des composés de polyphényle chlorés. A la différence des enseignements de la technique, les quantités de ces composés convenant pour la mise en oeuvre de la présente invention ne sont <sup>toutefois</sup> pas limitées aux quantités relativement petites, par exemple inférieures à 10 ppm, mais peuvent consister en des quantités supérieures à 10 ppm, par exemple jusqu'à 100 ppm. De même, des mélanges des divers inhibiteurs employés jusqu'ici peuvent être utilisés avantageusement dans la pratique de l'invention.

Dans une forme de réalisation de l'invention, lorsqu'on part d'une fraction d'éthylène commerciale contenant une quantité substantielle, d'au moins 10 moles %, de paraffines normalement gazeuses ayant plus d'un atome de carbone, l'éthylène, en sa forme commerciale impure, est alimenté directement dans la zone de réaction.

Dans la production d'oxyde d'éthylène par oxydation contrôlée, catalysée à l'argent, de l'éthylène avec de l'oxygène moléculaire conformément à l'invention, on fait passer les réactifs comprenant de l'éthylène, de l'oxygène et de l'éthane sur un catalyseur contenant de l'argent métallique dans des conditions de température et de pression conduisant à l'interaction de l'éthylène et de l'oxygène avec formation de produits de réaction comprenant de l'oxyde d'éthylène.



Les catalyseurs employés dans le procédé de l'invention consistent en un quelconque des catalyseurs contenant de l'argent métallique cités dans l'état de la technique, capables de catalyser l'oxydation contrôlée, avec de l'oxygène moléculaire, de l'éthylène en oxyde d'éthylène. Ils comprennent essentiellement les catalyseurs consistant essentiellement en argent métallique sur un support approprié. Des supports appropriés sont par exemple l'une quelconque des matières de support siliceuses et alumineuses employées jusqu'ici. Des catalyseurs particulièrement appropriés sont ceux consistant essentiellement en argent métallique sur des supports comme l'alundum, le carbure de silicium, la silice, le carborundum, l'un quelconque des supports en alumine, etc. Des catalyseurs appropriés sont par exemple décrits et revendiqués dans les brevets américains N° 3.207.700 et 2.752.362. Il est toutefois entendu que la présente invention n'est nullement limitée à l'emploi d'un catalyseur spécifique quelconque contenant de l'argent métallique.

Le catalyseur d'argent métallique utilisé dans le procédé de l'invention peut se présenter sous la forme d'un lit stationnaire, ou il peut être utilisé sous une forme fluidisée ou suspendue. Le procédé est applicable à l'emploi de plusieurs zones d'oxydation catalytique, disposées en série ou en parallèle. Quand on utilise plusieurs de ces zones, les réactifs et/ou l'éthane ajouté peuvent être introduits dans une ou plusieurs de celles-ci. Les conditions à l'intérieur de ces zones n'ont pas besoin d'être les mêmes, mais peuvent au contraire varier, tandis que les produits de réaction peuvent être séparés ou non entre ces zones. Une partie quelconque ou la totalité des

réactifs, de l'éthane et/ou des matières diluantes, peut être introduite dans une ou plusieurs des zones de réaction en plus d'un point de celles-ci.

La réaction d'oxydation contrôlée est effectuée à des températures de l'ordre par exemple d'environ 150 à environ 450°C, de préférence de l'ordre d'environ 200 à environ 300°C. Des pressions de l'ordre d'environ la pression atmosphérique jusqu'environ 35 atm. abs. sont généralement employées, l'intervalle d'environ 17,5 à 24,5 atm. abs. recevant la préférence. On peut néanmoins utiliser des pressions plus élevées tout en restant à la portée de l'invention. Des matières diluantes comme par exemple de l'azote, de l'anhydride carbonique, de la vapeur d'eau, etc. peuvent être présentes en diverses quantités. Ces diluants peuvent être introduits dans les systèmes à volonté, soit isolément, ou ensemble, avec de l'éthane et/ou de l'éthylène n'ayant pas réagi retiré de l'effluent du réacteur.

L'oxygène moléculaire employé comme réactif dans le procédé peut être obtenu de toute source appropriée. La charge d'oxygène appropriée peut consister essentiellement en oxygène relativement pur ou en un courant d'oxygène concentré comprenant de l'oxygène moléculaire en quantité majeure avec une quantité moindre d'un ou plusieurs gaz diluants inertes comme par exemple de l'azote, de l'argon, etc. Un gaz oxygéné concentré préféré, convenant pour l'emploi comme oxygène réactif de complément dans le procédé de l'invention, comprend du gaz oxygéné concentré consistant essentiellement en oxygène, azote et argon obtenu par exemple à partir de l'air par des moyens de séparation convenables consistant en un ou plusieurs stades de fractionnement, de distillation à basse température et autres moyens conventionnels de séparation. Le

gaz convenable contenant de l'oxygène possède de préférence une concentration d'oxygène d'au moins environ 85 moles %. Comme la quantité des matières gazeuses qui doivent être déchargées du procédé d'oxydation varie directement avec l'augmentation des diluants gazeux inertes introduits, et comme tout accroissement des matières déchargées s'accompagne généralement d'une diminution de rendement en oxyde d'éthylène à partir de l'éthylène alimenté, on préfère employer de l'oxygène moléculaire gazeux ayant des valeurs élevées de concentration en oxygène, par exemple d'environ 85 à environ 98 moles %. On préfère particulièrement employer un oxygène gazeux concentré contenant environ 90 à environ 97 moles % d'oxygène moléculaire. La concentration d'oxygène dans l'alimentation totale allant à la zone d'éthylène peut varier tout en restant à la portée de l'invention. En général la concentration ne doit pas dépasser environ 12 moles % de l'alimentation totale du réacteur. Comme on le signalait précédemment, on doit veiller à maintenir la concentration d'oxygène dans la charge en-dessous de la limite d'inflammabilité pour les conditions spécifiques employées.

Le procédé de l'invention peut être mis en oeuvre avec une concentration d'éthylène relativement étendue dans la charge totale se rendant à la zone de réaction. Ainsi l'éthylène peut par exemple constituer en gros environ 4 à environ 40 moles % de l'alimentation totale allant à la zone de réaction de l'éthylène. Une concentration de l'éthylène dans l'alimentation totale du réacteur d'environ 6 à environ 35 moles % est avantageuse, tandis que 15 à 30 moles % est une quantité particulièrement préférée. Toutefois des concentrations supérieures ou inférieures d'éthylène peuvent être employées en restant dans le cadre de l'invention. Le maintien d'une concentration d'éthylène spécifiquement désirée est facilitée par

une addition contrôlée d'éthane et par le contrôle de la quantité de matières telles que par exemple méthane, azote, anhydride carbonique, argon, etc. recyclées dans le système.

Chose surprenante, on a trouvé que contrairement à l'état de la technique il n'est pas nécessaire de maintenir un rapport molaire critique éthylène/oxygène supérieur à 1 dans l'alimentation totale allant à la zone de réaction. En outre, quelles que soient les concentrations relatives éthylène/oxygène, on peut utiliser des tubes de réacteur en acier au carbone, ainsi que des tubes en acier allié.

Par conséquent, les avantages de l'efficacité et de la productivité meilleures, inhérents à la mise en oeuvre de la présente invention, sont obtenus avec des contrôles moins rigoureux et moins compliqués que ceux exigés par les procédés déjà connus.

L'essentiel pour réaliser les objets de l'invention est l'inclusion d'une proportion substantielle d'éthane, d'au moins 10 moles % dans l'alimentation totale allant à la zone de réaction de l'éthylène. L'éthane introduit dans le système peut être obtenu à partir de toute source convenable. On notera que, contrairement au procédé au méthane de l'état de la technique déjà cité, la présence d'hydrocarbures paraffiniques autres que l'éthane n'est pas nuisible à la réalisation de l'objet de la présente invention. Des sources appropriées d'éthane comprennent par exemple le gaz naturel, les courants résiduels normalement gazeux contenant de l'éthane avec ou sans autres paraffines, obtenus dans les procédés thermiques de conversion des hydrocarbures, etc. Lorsque l'éthane est introduit dans le système à partir d'une source indépendante, on peut le combiner directement avec une partie ou la totalité de l'éthylène de complément, le courant de recyclage ou avec l'alimentation au point d'entrée dans la zone d'oxydation. Une partie ou la totalité de cet étha-

ne entrant dans le système peut être introduite sous forme de courant séparé dans la zone de réaction en un ou plusieurs points sur la longueur de celle-ci.

Au cours des recherches qui ont conduit à la présente invention, différentes fabrications d'essai ont été exécutées.

Le premier essai de préparation d'oxyde d'éthylène est effectué dans le but de fournir un standard ou une base de référence où il n'y a pas pratiquement d'éthane contenu dans l'alimentation totale allant à la zone d'oxydation de l'éthylène.

Dans cet essai, on oxyde de l'éthylène en oxyde d'éthylène en faisant réagir de l'éthylène avec de l'oxygène moléculaire en présence d'un catalyseur d'argent métallique supporté, à une température de 250° C et sous une pression de 22,05 atm. abs. La charge d'éthylène de complément consiste essentiellement en de l'éthylène à 100%, à un débit de 517,56 g par heure. La charge d'oxygène gazeux de complément consiste essentiellement en de l'oxygène à 99,5% alimentée à un débit de 753,64 g par heure. Une charge indépendante d'azote frais, substantiellement d'azote à 100%, à un débit de 4,54 g par heure, complète les courants de la charge de complément. Aux courants gazeux de complément on ajoute du gaz de recyclage à un débit de 23.017,8 g par heure. Ce gaz de recyclage a une composition molaire de 15,2% d'éthylène, 4,6% d'oxygène, 7,4% d'anhydride carbonique, 32% d'argon et 40,8% d'azote. L'alimentation totale résultante envoyée au réacteur circule à un débit de 24.889 g par heure et possède une composition molaire de 17% d'éthylène, 7,5% d'oxygène, 7% d'anhydride carbonique, 30% d'argon et 38,5% d'azote. A cette alimentation on ajoute 0,5 ppm en poids de dichlorure d'éthylène. L'oxyde d'éthylène est récupéré à partir de l'effluent du réacteur par absorption dans de l'eau, suivie de la distillation de l'absorbat aqueux riche. L'effluent gazeux résiduel du réacteur, débarrassé des produits de réaction comprenant l'oxyde d'éthylène, est renvoyé comme gaz de recyclage à la réaction, à l'exception d'une petite purge constante d'élimination hors du système. La détermination de la différence entre

l'oxyde d'éthylène d'entrée et de sortie au réacteur indique une valeur  $\Delta EO$  de 1,75. La valeur  $\Delta EO$  est couramment employée comme étalon, puisqu'elle est proportionnelle à la productivité d'oxyde d'éthylène. Le rendement global de cet essai est de 68,6%

Un premier essai selon l'invention est effectué avec de l'éthane présent dans l'alimentation totale, en quantité substantielle comme ballast. Dans cet essai, la charge d'éthylène de complément comprenant essentiellement de l'éthylène à 100% est employée à un débit de 594,74 g par heure. La charge d'oxygène gazeux de complément, comprenant essentiellement de l'oxygène à 99,5% est employée à un débit de 848,98 g par heure. Le troisième et dernier courant de charge consiste essentiellement en de l'éthane gazeux à 100%, à un débit de 9,08 g par heure. Un gaz de recyclage, à un débit de 22.856,2 g par heure, est mélangé avec les courants de complément. La composition molaire du gaz de recyclage est de 15,2% d'éthylène, 8,0% d'oxygène, 7,5% d'anhydride carbonique, 17% d'argon et 52,5% d'éthane. L'alimentation totale résultante, à un débit de 24.289 g par heure, est introduite dans le réacteur qui contient le même type de catalyseur et qui est maintenu dans les mêmes conditions de température et de pression que dans l'essai de référence. La composition molaire de l'alimentation totale est de 17% d'éthylène, 11% d'oxygène, 7% d'anhydride carbonique, 16% d'argon et 49% d'éthane. L'inhibiteur le dichlorure d'éthylène, est ajouté en une quantité de 15 ppm en poids au gaz de réaction, la valeur  $\Delta EO$  déterminée pour cet essai est de 1,92, tandis que le rendement global est de 68,6%.

Un second essai conforme à l'invention avec de l'éthane présent dans l'alimentation totale, en quantité substantielle comme ballast, mais avec une concentration plus grande en éthylène, est également effectué. La charge d'éthylène de complément dans cet essai consiste essentiellement en de l'éthylène à 100%, à un débit de 658,3 g par heure. L'oxygène gazeux de complément

consiste essentiellement en de l'oxygène à 99,5% et il a un débit de 944,32 g par heure. Une charge indépendante de complément d'éthane essentiellement à 100%, est également employée à un débit de 9,08 g par heure.

Un gaz de recyclage, à un débit de 22.677,3 g par heure, est mélangé avec les courants de complément. Ce gaz de recyclage a une composition molaire de 23,6% d'éthylène, 7,7% d'oxygène, 7,6% d'anhydride carbonique 14% d'argon et 47,1% d'éthane. L'alimentation totale au réacteur, à un débit de 24.289 g par heure, a une composition molaire de 25% d'éthylène, 11% d'oxygène, 7% d'anhydride carbonique, 13% d'argon et 44% d'éthane. On introduit du dichlorure d'éthylène à raison de 15 ppm en poids dans le réacteur comme inhibiteur. La valeur  $\Delta EO$  pour cet essai est déterminée comme étant de 2,13, tandis que le rendement global est de 68,6%

La composition et les résultats des essais de référence et conformes à l'invention sont donnés ci-après au tableau I pour la facilité de la comparaison:

TABLEAU I

	Etat de la technique essai de référence	selon l'invention	
		Essai n° 1	Essai n° 2
Ethylène	17	17	25
Oxygène	7,5	11	11
Anhydride carbonique	7	7	7
Argon	30	16	13
Azote	38,5	--	--
Ethane	--	49	44
Dichlorure d'éthylène	0,5 ppm	15ppm	15ppm
$\Delta EO$	1,75	1,92	2,13
rendement global	68,0%	68,6%	68,6%

Note. les constituants du mélange de réaction gazeux sont donnés en moles ou volume%, sauf pour le dichlorure d'éthylène

7587

qui est exprimé en parties par million en poids.

Un examen des résultats au tableau I montre de façon concluante que l'utilisation d'éthane comme constituant majeur de l'alimentation totale apporte une amélioration significative dans la productivité de l'oxyde d'éthylène, de l'ordre de 10%, sans sacrifier nullement le rendement global. Cette amélioration est apparemment attribuable directement à la concentration accrue d'oxygène dans le mélange gazeux de réaction. On notera que, d'après l'essai n° 2, où les conditions de réaction sont substantiellement les mêmes, à la seule exception d'une plus grande concentration d'éthylène dans le mélange gazeux de réaction, on obtient une nouvelle amélioration de la productivité d'oxyde d'éthylène, l'amélioration de la productivité dans l'essai n° 2 étant de l'ordre de 22%.

Bien que l'invention ait été décrite en relation avec certains exemples spécifiques, l'homme de métier comprendra que diverses modifications dans la composition et le mode opératoire peuvent être apportées pour s'adapter à certaines exigences spécifiques, sans s'écarter de l'esprit ni de la portée de l'invention telle qu'on la définit dans les revendications ci-jointes.

#### REVENDEICATIONS

1. Procédé de production d'oxyde d'éthylène par oxydation contrôlée catalysée à l'argent de l'éthylène avec de l'oxygène moléculaire, caractérisé en ce qu'on utilise de l'éthane en une quantité d'au moins 10 moles % dans le mélange de réaction d'oxydation.

2. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce qu'une portion substantielle de l'éthane est fournie par l'alimentation d'éthylène, l'éthane y étant présent sous forme d'impureté.

3. Procédé suivant la revendication 1, caractérisé en ce que l'éthane est fourni par une alimentation d'éthane indépendante.



4. Procédé de production d'oxyde d'éthylène par oxydation contrôlée catalysée à l'argent de l'éthylène avec de l'oxygène moléculaire, caractérisé en ce qu'on fait passer un mélange gazeux sur un catalyseur contenant de l'argent dans une zone de réaction dans des conditions de formation d'oxyde d'éthylène, ce mélange comprenant de l'éthylène, de l'oxygène et au moins 10 moles % d'éthane.

5. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que la matière alimentée comprend de l'éthylène impur, cet éthylène contenant de l'éthane comme impureté majeure.

6. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que la matière alimentée comprend essentiellement de l'éthylène exempt d'éthane et en ce que de l'éthane est introduit dans le gaz de réaction à partir d'une source distincte.

7. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que la matière alimentée comprend de l'éthylène contenant de l'éthane ainsi que de l'éthane provenant d'une source distincte.

8. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que le mélange contient un inhibiteur d'activité du catalyseur.

9. Procédé suivant la revendication 8, caractérisé en ce que l'inhibiteur est présent en une quantité efficace dans le but de combattre toute réduction de sélectivité attribuable à la présence de l'éthane.

10. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que la matière d'alimentation comprend de l'oxygène de grande pureté.

11. Procédé suivant la revendication 10, caractérisé en ce que l'oxygène a une pureté d'au moins 85 moles%.

12. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que le mélange comprend:

éthylène	4-40 moles %
oxygène	6-15 moles %
éthane	10-80 moles %
inhibiteur	1-100 ppm en poids

13 Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que le mélange comprend:

éthylène	6-35 moles %
oxygène	8-14 moles %
éthane	20-70 moles %
inhibiteur	5-70 ppm en poids

14. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que le mélange comprend:

éthylène	15-30 moles %
oxygène	10-13 moles %
éthane	40-60 moles %
inhibiteur	10-20 ppm en poids

15. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que le mélange comprend:

éthylène	environ 17 moles %
oxygène	environ 11 moles %
éthane	environ 49 moles %
dichlorure d'éthylène	environ 15 ppm en poids

16-Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que le mélange comprend:

éthylène	environ 25 moles %
oxygène	environ 11 moles %
éthane	environ 44 moles %
chlorure d'éthylène	environ 15 ppm en poids

17. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que le mélange comprend de la matière d'alimentation et du gaz de recyclage.

18. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que la zone de réaction est maintenue à une température de l'ordre d'environ 150 à environ 450°C et à une pression allant d'environ la pression atmosphérique jusqu'à environ 35 atm.abs.

19. Procédé suivant la revendication 4, caractérisé en ce que la zone de réaction est maintenue à une température de l'ordre d'environ 200 à environ 300°C et à une pression de l'ordre d'environ 17,5 à environ 24,5 atm.abs.

20. Tout procédé, produit, appareil ou toute combinaison de ceux-ci, substantiellement comme décrit ici.

Bruxelles, le 5 décembre 1967  
P.Pon. : Société dite : HALCON INTERNATIONAL,  
INC.

*Recevoir à ...*

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☐ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☒ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**